

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2003-112355

(43)Date of publication of application : 15.04.2003

(51)Int.Cl.

B29C 47/04  
B29C 47/14  
B29C 47/92  
B32B 27/36  
C08L 67/02  
// B29K 67:00  
B29L 7:00  
B29L 9:00  
B29L 11:00

(21)Application number : 2001-308467

(71)Applicant : TEIJIN DUPONT FILMS JAPAN  
LTD

(22)Date of filing : 04.10.2001

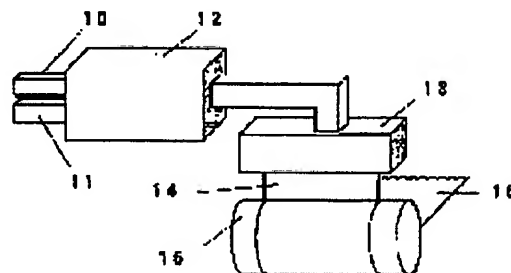
(72)Inventor : NAKANISHI YASUSUKE

### (54) METHOD AND APPARATUS FOR MANUFACTURING MULTILAYER FILM

(57)Abstract:

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To provide a method and an apparatus for manufacturing a multilayer laminated film in which a light having an arbitrary wavelength band is selectively reflected or transmitted by alternatively laminating many layers each having a high refractive index and many layers each having a low refractive index and controlling the ratio of the maximum value to the minimum value of the thicknesses of the respective layers.

**SOLUTION:** The method for manufacturing the multilayer laminated film comprises the steps of individually melting a resin A and a resin B by an extruder, branching the molten resins to multiple layers via pores in a multilayer feeding block, then guiding the branched resin A and resin B to a flat channel partitioned by a parallel plate so as to alternatively inflow the resins A and B in 11 layers or more further introducing the resins to a combining unit 12 in the block, then extruding the resins A and B in a sheet-like state in a direction to become the multilayers in the thickness direction from a die 13 continued to the



unit 12, cooling to solidify the resin at a casting drum 15, and at least unidirectionally stretching the unstretched film 16 in longitudinal and lateral directions. The method further comprises the steps of controlling the temperature distribution of the block, and thereby regulating the thicknesses of the layers A and B of the multilayer film in the range of 0.01 to 0.5  $\mu\text{m}$ .

---

#### LEGAL STATUS

[Date of request for examination] 05.07.2004

[Date of sending the examiner's decision of rejection] 02.05.2006

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2003-112355

(P2003-112355A)

(43) 公開日 平成15年4月15日 (2003.4.15)

(51) Int.Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	テマコード(参考)
B 2 9 C 47/04		B 2 9 C 47/04	4 F 1 0 0
47/14		47/14	4 F 2 0 7
47/92		47/92	4 J 0 0 2
B 3 2 B 27/36		B 3 2 B 27/36	
C 0 8 L 67/02		C 0 8 L 67/02	

審査請求 未請求 請求項の数11 O L (全 10 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2001-308467(P2001-308467)

(22) 出願日 平成13年10月4日 (2001.10.4)

(71) 出願人 301020226

帝人デュボンフィルム株式会社

東京都千代田区内幸町二丁目1番1号

(72) 発明者 中西 庸介

神奈川県相模原市小山3丁目37番19号 帝

人デュボンフィルム株式会社相模原研究セ

ンター内

(74) 代理人 100077263

弁理士 前田 純博

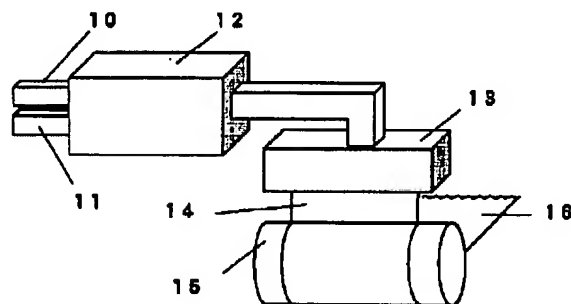
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 多層フィルムの製造方法及び装置

(57) 【要約】 (修正有)

【課題】 屈折率の高い層と低い層を交互に多数積層させ、且つその各層の厚みの最大値と最小値の比を制御することにより、任意の波長帯の光を選択的に反射または透過させる多層積層フィルムの製造方法及びその装置を提供する。

【解決手段】 樹脂Aと樹脂Bを別個に押出機で溶融し、それぞれの溶融樹脂を多層フィードブロック内の細孔により多層に分岐した後、分岐した樹脂Aと樹脂Bが交互に11層以上流入するよう平行板で仕切られた扁平な流路に導き、更に多層フィードブロック内の合流部12に導いた後、これに続くダイ13より樹脂Aと樹脂Bが厚み方向に多層となる向でシート状に押出し、キャストリングドラム15で冷却固化し、この未延伸フィルム16を縦方向及び横方向の少なくとも一方向に延伸する多層フィルムの製造方法であって、該多層フィードブロックの温度分布を制御することにより多層フィルムのA層及びB層の厚みを0.01~0.5 $\mu$ mの範囲に調整する。



## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 樹脂AからなるA層と樹脂BからなるB層とが交互に11層以上積層された多層フィルムの製造方法において、樹脂Aと樹脂Bを別個に押出機で溶融し、それぞれの溶融樹脂を多層フィードブロック内の細孔により多層に分岐した後、分岐した樹脂Aと樹脂Bが交互に11層以上流入するよう平行板で仕切られた扁平な流路に導き、更に多層フィードブロック内の合流部に導いた後、これに続くダイより樹脂Aと樹脂Bが厚み方向に多層となる向でシート状に押出し、キャスト

10

10 ドラムで冷却固化して未延伸フィルムとし、この未延伸フィルムを縦方向及び横方向の少なくとも一方向に延伸する多層フィルムの製造方法であって、該多層フィードブロックの温度分布を制御することにより多層フィルムのA層及びB層の厚みを0.01~0.5μmの範囲に調整することを特徴とする多層フィルムの製造方法。

20

【請求項2】 多層フィードブロックに温度分布を持たせることにより多層フィルムのA層及びB層の最も厚い層の厚みを最も薄い層の厚みで割った値が1.2以上となるよう調整する請求項1に記載の多層フィルムの製造方法。

【請求項3】 多層フィードブロックの温度差が10~100℃の範囲である請求項2に記載の多層フィルムの製造方法。

【請求項4】 多層フィードブロックの温度差を10℃未満に制御することにより多層フィルムのA層及びB層の最も厚い層の厚みを最も薄い層の厚みで割った値が1.2未満となるよう調整する請求項1に記載の多層フィルムの製造方法。

30

【請求項5】 未延伸フィルムにおいて、樹脂Aの面内方向屈折率と樹脂Bの面内方向屈折率の差が0.005以上である請求項1に記載の多層フィルムの製造方法。

【請求項6】 少なくとも1方向に延伸されたフィルムにおいて、樹脂Aの面内方向屈折率と樹脂Bの面内方向屈折率の差が0.005以上である請求項1に記載の多層フィルムの製造方法。

【請求項7】 樹脂Aがポリエチレン-2、6-ナフタレートの主成分とする請求項1に記載の多層フィルムの製造方法。

40

【請求項8】 樹脂Bがポリエチレン-2、6-ナフタレートとポリエチレンテレフタレートの混合物を主成分とする請求項7に記載の多層フィルムの製造方法。

【請求項9】 樹脂Bが融点210~245℃のポリエチレンテレフタレート共重合体を主成分とする請求項7に記載の多層フィルムの製造方法。

【請求項10】 ポリエチレンテレフタレート共重合体の共重合成分がエチレンイソフタレートである請求項9に記載の多層フィルムの製造方法。

【請求項11】 請求項1に記載の多層フィルムの製造方法に用いる、温度分布の制御手段を設けた多層フィ

50

ードブロック。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は多層フィルムの製造方法及び装置に関する。更に詳しくは、11層以上積層された多層フィルムの厚み分布を効率良く制御できる多層フィルムの製造方法及び装置に関し、特に屈折率の高い層と低い層を交互に多数積層させた多層フィルムの各層の厚みを制御することができ、任意の波長帯の光を選択的に反射または透過させることができる多層フィルムを効率良く生産できる多層フィルムの製造方法及び装置に関する。

## 【0002】

【従来の技術】多層フィルムは、例えば屈折率の高い層と低い層を交互に多数積層すると、これら層間の構造的な光干渉によって特定波長の光を選択的に反射または透過する光学干渉フィルムとなる。このような積層フィルムは選択的に反射または透過する光の波長領域を可視光領域とすることによって、反射型の偏光板や発色フィルム、金属光沢フィルム、反射ミラーフィルムへの用途が広がりつつある。また、プラズマディスプレイ等の映像表示パネル面に使用できる近赤外線反射フィルムでは、周辺機器への誤作動防止のため、ある幅を持った波長領域(820~980nm)で近赤外線を吸収する必要がある。また、日射カット用の窓張り用フィルム等でも近赤外領域をカットすることで日射を和らげられる。

【0003】このような積層フィルムに対しては各層の厚みに変化を持たせるフィルムが特開2000-329935号公報などに提案されている。しかし、各層に厚み変化を持たせた積層フィルムを製造する場合、樹脂を細孔で多層に分岐するタイプのフィードブロックでは、厚みの変化量に応じて細孔の幅が徐々に異なる複雑な構造の専用フィードブロックを用いなければならず、その作成に技術的困難や多大な費用が伴うため問題がある。

【0004】更に、各層の厚みの変化量を変更したい場合や、各層の厚みを均一にしたい場合には、各々専用フィードブロックを新たに作成する必要があるため、多大な費用を要する問題がある。また、製膜上も多層フィルムの種類に応じてフィードブロックを交換する必要がある、手間がかかることや製膜の効率が悪くなる等の問題が生じる。

## 【0005】

【発明が解決しようとする課題】本発明の課題は、上述の問題を解消し、多層フィルムの厚み分布を効率良く制御でき、特に屈折率の高い層と低い層を交互に多数積層させた多層フィルムを効率良く生産できる多層フィルムの製造方法および装置を提供することにある。

## 【0006】

【課題を解決するための手段】本発明の課題は、本発明によれば、(1)樹脂AからなるA層と樹脂Bからなる

B層とが交互に11層以上積層された多層フィルムの製造方法において、樹脂Aと樹脂Bを別個に押出機で溶解し、それぞれの溶解樹脂を多層フィードブロック内の細孔により多層に分岐した後、分岐した樹脂Aと樹脂Bが交互に11層以上流入するよう平行板で仕切られた扁平な流路に導き、更に多層フィードブロック内の合流部に導いた後、これに続くダイより樹脂Aと樹脂Bが厚み方向に多層となる向でシート状に押出し、キャストドラムで冷却固化して未延伸フィルムとし、この未延伸フィルムを縦方向及び横方向の少なくとも一方向に延伸する多層フィルムの製造方法であって、該多層フィードブロックの温度分布を制御することにより多層フィルムのA層及びB層の厚みを0.01~0.5μmの範囲に調整することを特徴とする多層フィルムの製造方法により達成できる。

【0007】また、本発明の更に好ましい態様として、

(2) 多層フィードブロックに温度分布を持たせることにより多層フィルムのA層及びB層の最も厚い層の厚みを最も薄い層の厚みで割った値が1.2以上となるよう調整する(1)に記載の多層フィルムの製造方法、

(3) 多層フィードブロックの温度差が10~100℃の範囲である(2)に記載の多層フィルムの製造方法、

(4) 多層フィードブロックの温度差を10℃未満に制御することにより多層フィルムのA層及びB層の最も厚い層の厚みを最も薄い層の厚みで割った値が1.2未満となるよう調整する(1)に記載の多層フィルムの製造方法、(5) 未延伸フィルムにおいて、樹脂Aの面内方向屈折率と樹脂Bの面内方向屈折率の差が0.005以上である(1)に記載の多層フィルムの製造方法、

(6) 少なくとも1方向に延伸されたフィルムにおいて、樹脂Aの面内方向屈折率と樹脂Bの面内方向屈折率の差が0.005以上である(1)に記載の多層フィルムの製造方法、(7) 樹脂Aがポリエチレン-2,6-ナフタレートを主成分とする(1)に記載の多層フィルムの製造方法、(8) 樹脂Bがポリエチレン-2,6-ナフタレートとポリエチレンテレフタレートの混合物を主成分とする(7)に記載の多層フィルムの製造方法、(9) 樹脂Bが融点210~245℃のポリエチレンテレフタレート共重合体を主成分とする(7)に記載の多層フィルムの製造方法、(10) ポリエチレンテレフタレート共重合体の共重合成分がエチレンイソフタレートである(9)に記載の多層フィルムの製造方法を挙げることができる。

【0008】また、本発明の課題は、(11) 樹脂AからなるA層と樹脂BからなるB層とが交互に11層以上積層された多層フィルムの製造方法において、樹脂Aと樹脂Bを別個に押出機で溶解し、それぞれの溶解樹脂を多層フィードブロック内の細孔により多層に分岐した後、分岐した樹脂Aと樹脂Bが交互に11層以上流入するよう平行板で仕切られた扁平な流路に導き、更に多層

フィードブロック内の合流部に導いた後、これに続くダイより樹脂Aと樹脂Bが厚み方向に多層となる向でシート状に押出し、キャストドラムで冷却固化して未延伸フィルムとし、この未延伸フィルムを縦方向及び横方向の少なくとも一方向に延伸する多層フィルムの製造方法であって、該多層フィードブロックの温度分布を制御することにより多層フィルムのA層及びB層の厚みを0.01~0.5μmの範囲に調整することを特徴とする多層フィルムの製造方法に用いる、温度分布の制御手段を設けた多層フィードブロックにより達成できる。

【0009】

【発明の実施の形態】以下、図面を引用して本発明を説明する。図1は、本発明の一つの実施形態を例示した多層フィードブロックの平面図である。図2はA層用溶解樹脂Aの多層フィードブロック内の流路断面を示す断面側面図であり、図3はB層用溶解樹脂Bの多層フィードブロック内の流路断面を示す断面側面図である。図4は多層フィードブロック内の溶解樹脂をダイから押出し、キャストドラムで冷却して未延伸フィルムとする際の各装置の配置を示す概要図である。

【0010】図1~3において、1、1aはそれぞれ上側、下側抑えブロック、2、2aはそれぞれ上側、下側分岐ブロック、3は合流ブロック、4a~4dは上側ヒーター、5a~5dは下側ヒーター、6、6aはそれぞれ上側、下側マニホールド、7、7aはそれぞれ上側、下側細孔、8は平行板で仕切られた扁平な流路、9は平行板、aはA層を構成する溶解樹脂Aの流れ方向、bはB層を構成する溶解樹脂Bの流れ方向である。

【0011】また、図4において、10は多層フィードブロックへの溶解樹脂Bの導管、11は多層フィードブロックへの溶解樹脂Aの導管、12は多層フィードブロック、13は押出ダイ、14はダイより押出されたシート、15はキャストドラム、16は未延伸フィルムである。

【0012】尚、図1~図3のフィードブロックの各図は、1つの実施形態を例示したものであり、細孔7と平行板9、細孔7aと平行板9はそれぞれ垂直に合流しているが、樹脂の経路差による滞留時間を平均化するためある角度をもって斜めに合流させてもよく、また、樹脂Aの流れ方向a、若しくは樹脂Bの流れ方向bのどちらか一方をストレートの流路にすることも可能である。

【0013】フィードブロックに導入されたB層用の溶解樹脂Bはマニホールド6内で一旦幅方向に広げられ、一列に並んだ細孔7を通して平行板9で仕切られた扁平な流路8へと至る。一方、A層用の溶解樹脂Aも同様にマニホールド6a、細孔7aを通して平行板9で仕切られた扁平な流路8へと至る。平行板9で仕切られた扁平な流路8(平行板9の各部材間の間隙)ではすでに樹脂Aと樹脂Bとが交互に配置され、その後平行板で仕切られた扁平な流路8出口の合流ブロック3の空隙部で合流し

A層とB層の各熔融樹脂が流動状態で交互に積層される。

【0014】細孔7と7aの幅は、狭すぎると幅寸法に対して各層流量が敏感に反応するため高精度の加工を要求され、逆に広すぎると細孔で圧が立たないため各層流量がばらつきやすいので、0.2~2mmが好ましく、0.5~1mmがより好ましい。また各細孔は実質上同寸法で製作しておく、例えばフィードブロックの幅方向に温度差が10℃未満となるよう（等温状態）に温度制御すれば、各層の厚みが均一な多層積層フィルムを製

10 膜でき、或いは各層の厚みに変化をつける時には後述の温度制御で対応することができる。細孔の長さは、ワイヤーによる放電加工の関係から長すぎると加工できないため、5~20mmが好ましく、7~12mmがより好ましい。

【0015】平行板9の肉厚は、薄すぎるとメンテナンスで破損しやすく、運転中も樹脂の内圧で曲がってしまい、厚すぎると層数を増やした場合、フィードブロックの幅が広くなり大型化してしまうので、0.3~4mmが好ましく、0.5~2mmがより好ましい。平行板9

20 の長さも、破損し難く、適度に圧損を稼ぐ観点から5~40mmが好ましく、10~20mmがより好ましい。平行板9の配置ピッチは細孔7、7aの幅寸法と合わせておくことが好ましく、段差無く組み込むことにより樹脂の滞留劣化がなく良好なフィルムを製膜できる。

【0016】以上で判るとおり、フィードブロックを構成する1、1a（上側、下側抑えブロック）、2、2a（上側、下側分岐ブロック）、3（合流ブロック）、9（平行板）の各ブロックは、高精度の加工が必要であり、しかし強度的に弱い構造となっており、材質としては硬めのSUS630やSUS420（J2）が好適である。また各ブロックの樹脂の流動面は0.6S以上の仕上げをしておく、筋欠陥等がない多層積層フィルムを製膜できる。

【0017】本発明で各層の厚みに変化をつけるには、ヒーター4a~4dを独立に温度制御し、フィードブロックの幅方向に温度差を付与する。これにより細孔7、7aと平行板9も個々に幅方向に温度分布を持つことになり、これらと接して流れるA層とB層の各層熔融樹脂は、主に金属との接触面において溶融粘度が変化し、圧損が変化し、この結果として流量が変化し、各層厚みを制御できる。ヒーター5a~5dをヒーター4a~4dと対応させ温度制御した場合は、A層とB層の各層厚みをほぼ同程度の比率で厚み変化させることができるが、例えばA層側の厚み変化を極端に付与したい場合もしくは均一にしたい場合は、ヒーター5a~5dをヒーター4a~4dとは別に独立に制御させても良い。

【0018】本発明の多層フィルムの製造方法では、多層フィードブロックに温度分布を制御することにより、多層フィルム中のA層及びB層の最も厚い層の厚みを最

も薄い層の厚みで割った値（以下「厚み比率」ということがある）が1.2以上となるよう調整することができ、また、厚み比率が1.2未満となるよう調整することができる。多層フィルムの厚み比率は、多層フィルムが用いられる用途の目的に応じて選択することができる。

【0019】厚み比率が1.2以上の多層フィルムを得る場合、ヒーターの温度制御範囲は、上抑えブロック1の温度と下抑えブロック1aとの温度差を10~100℃に制御することが好ましい。この温度差の上限が100℃を超えるとフィードブロックが熱変形してしまうことがある。このため温度差の上限は60℃であることがより好ましい。また、ヒーターは片側に4枚の場合を図1に例示したが、本発明の性格からこれ以上の個数を並べてもより細かく各層厚み制御できるが、少なくとも2個以上であれば目的を達成できる。加熱方式としては、従来から知られ用いられる方式を用いることができ、アルミ鋳込みヒーターやバンドヒーターなど接触式のヒーターや、IR赤外線ヒーターなど非接触のもの、或いは蒸気熱媒による加熱方式が例示できる。また、これらの加熱方式と併せて冷却を併用してもよく、ファンや温水で局所冷却して温度制御しても良い。

【0020】本発明において、多層フィルムを日射カット用の近赤外カットフィルム、反射型の偏光板や発色フィルム、金属光沢フィルム、反射ミラーフィルム等用途に用いる場合は、厚み比率が1.2以上となるように多層フィードブロックに温度分布を持たせることが好ましい。この厚み比率は、従来の積層フィルムではできなかったより幅広い波長帯の光を選択的に反射する目的を達成するため、1.5以上とすることが好ましく、1.8以上とすることが更に好ましい。

【0021】A層またはB層の厚みのいずれかは、前述の温度制御によって連続的に変化させるか、またはフィードブロックにスリット加工や断熱材を挿入するなどして、温度制御の独立性を高めることで各層厚みをステップ的に何段階かに分けて変化させても良く、この場合は熱の相互干渉が少なくなり温度制御が安定しやすいメリットがある。

【0022】上記の目的に対しては、多層フィルムの厚み比率は1.2以上であることが好ましいが、多層フィルム中のA層の最も厚い層の厚みをA層の最も薄い層の厚みで割った値（以下「A層の厚み比率」ということがある）が1.2以上であることが更に好ましく、多層フィルム中のB層の最も厚い層の厚みをB層の最も薄い層の厚みで割った値（以下「B層の厚み比率」ということがある）も同時に1.2以上となることが、更に好ましい。

【0023】本発明におけるA層とB層の積層状態は、A層とB層を交互に総数で11層以上、好ましくは31層以上積層したものである。積層数が11層未満だと多

重干渉による選択反射が小さく十分な反射率が得られない。尚、積層数の上限は生産性の観点から301層であることが好ましい。多層積層フィルムの層数に応じて個々に専用フィードブロックを用意しても良いが、本発明のマニホールドと細孔によって多層に分岐する装置であれば、必要層数に応じて細孔の樹脂入り口を塞ぐインナーディッケルを挿入し層数をコントロールする方がコストの面で有利である。

【0024】また、A層およびB層はそれぞれ1層の厚みは0.01~0.5 $\mu$ mであることが層間の光干渉によって選択的に光を反射するのに必要である。

【0025】尚、厚み比率が1.2未満の多層フィルムを得る場合、即ち各層の厚みが均一な多層フィルムを得る場合には、ヒーター4a~4dとヒーター5a~5dを制御し、フィードブロックの幅方向に温度差が10℃未満となるようにする。これにより細孔7、7aと平行板9の幅方向に温度が均一になり、これらと接して流れるA層とB層の各層熔融樹脂は、各々熔融粘度が均一になるので各層の厚みが均一な多層フィルムを得ることができる。

【0026】本発明における多層積層フィルムは、例えば、ポリエチレン-2、6-ナフタレートの主とするA層を形成するポリマーとB層を形成するポリマーを図に例示したフィードブロックで2層を交互に積層し、積層状態を維持したままこれに続くダイに展開される。ダイより押出されたシートはキャストイングドラムで冷却固化され未延伸フィルムとなる。未延伸フィルムは所定の温度で、縦かつまたは横方向に延伸され所定の温度で熱処理され、必要によっては熱弛緩処理され、巻き取られる。

【0027】ところで、本発明の多層積層フィルムは少なくとも1方向に延伸され、好ましくは2軸延伸されているが、本発明ではA層側に高屈折率のポリマーを選定しているため、延伸温度はA層の樹脂のガラス転移点(T<sub>g</sub>)から(T<sub>g</sub>+50)℃の範囲で行うことが好ましい。延伸倍率としては1軸延伸の場合、2~10倍で延伸方向は縦であっても横でも構わない。2軸延伸の場合は面積倍率として5~25倍である。延伸倍率が大きいほど、A層およびB層の個々の層における面方向のばらつきが、延伸による薄膜化により絶対的に小さくなり、多層積層フィルムの光干渉が面方向に均一になるので好ましい。延伸方法としては、逐次2軸延伸、同時2軸延伸、チューブラー延伸、インフレーション延伸等の公知の延伸方法が可能であるが、好ましくは逐次2軸延伸が生産性、品質の面で有利である。

【0028】また、延伸されたフィルムは熱的な安定化のために、熱処理により安定化されるのが好ましい。熱処理の温度としては、(B層の融点-30)℃より高く(A層の融点-30)℃より低いのが好ましい。

【0029】更にまた本発明の多層積層ポリエステルフ

ィルムはB層が両端層のどちらか一方にあるとA層を形成するポリマーのガラス転移点がB層を形成するポリマーのそれよりも通常高いので、延伸のためロール等で加熱する際にA層を延伸するのに必要な延伸温度に上げることができなかつたり、熱固定する際に表面のB層が融解するのを防ぐために温度が上げられず熱的な安定性が不十分となるなどの問題が発生する場合がある。これに対して、A層が両端層にあると熱的に不安定なB層が内層に位置するため十分な延伸温度や熱固定温度で生産できるので、本発明の多層積層フィルムはA層が両端層に位置するものが好ましい。尚、本発明で言う両端層とは多層積層フィルムの面方向に垂直な方向の最外層である。

【0030】また本発明の多層積層フィルムの製造過程、または製造後にフィルムの表面に機能性を持たせる等の目的で、塗液を塗布し乾燥する工程を設けても良い。

【0031】本発明においてA層を構成する樹脂Aとは、延伸可能なポリマーを主成分とする熱可塑性樹脂であり、例えばポリエチレンテレフタレート、ポリエチレン-2、6-ナフタレート、ポリブチレンテレフタレートのような芳香族ポリエステル、ポリエチレン、ポリプロピレンのようなポリオレフィン、ポリスチレンのようなポリビニル、ナイロン6(ポリカプロラクタム)、ナイロン66(ポリ(ヘキサメチレンジアミン-c o o-アジピン酸))のようなポリアミド、ビスフェノールAポリカーボネートのような芳香族ポリカーボネート、ポリスルホン等の単独重合体或いはこれらの共重合体を主成分とする樹脂を挙げることができる。

【0032】上記熱可塑性樹脂の中では、延伸による分子配向が可能な芳香族ポリエステル、ポリオレフィン、ポリアミドが好ましく、分子が二軸配向した際に光学的、機械的、熱的特性が優れたものになるポリエチレン-2、6-ナフタレートが特に好ましい。

【0033】本発明においてA層を構成する樹脂Aにポリエチレン-2、6-ナフタレートを主体とする樹脂を用いる場合、エチレン-2、6-ナフタレート単位を主とする共重合ポリエチレン-2、6-ナフタレート、或いはポリエチレン-2、6-ナフタレートを主とする組成物使用することができる。ここで「主とする」とは共重合体または組成物におけるエチレン-2、6-ナフタレート単位の割合が全成分に対して85モル%以上を占めることを言う。共重合体を使用する場合、その共重合成分は15モル%以下、更に2モル%以下であることが好ましい。共重合成分は、ジカルボン酸成分であってもグリコール成分であっても良く、ジカルボン酸成分としては例えばイソフタル酸、フタル酸、ナフタレンジカルボン酸等の如き芳香族ジカルボン酸；アジピン酸、アゼライン酸、セバシン酸、デカンジカルボン酸等の如き脂肪族ジカルボン酸；シクロヘキサンジカルボン酸の如



き脂環族ジカルボン酸等を挙げることができ、グリコール成分としては例えばブタンジオール、ヘキサジオール等の如き脂肪族ジオール；シクロヘキサジメタノールの如き脂環族ジオール等を挙げることができる。

【0034】本発明における樹脂Bは、A層を構成する熱可塑性樹脂と屈折率が異なる熱可塑性樹脂であり、例えば樹脂Aよりも屈折率が0.005以上低い、より好ましくは0.02以上低い熱可塑性樹脂低い樹脂を挙げることができる。ここでいう屈折率とはシート状或いはフィルム状の樹脂の面内方向屈折率である。

【0035】本発明においてA層を構成する樹脂Aにポリエチレン-2、6-ナフタレートを用いる場合は、樹脂Bはポリエチレン-2、6-ナフタレートよりも屈折率が低い樹脂であることが好ましく、更に屈折率がポリエチレン-2、6-ナフタレートよりも0.005以上低い樹脂であることが好ましく、特に屈折率が0.02以上低い樹脂であることが好ましい。このような熱可塑性樹脂としては、以下の(1)～(3)の3種類を好ましく挙げることができる。

【0036】(1) ポリエチレン-2、6-ナフタレートとポリエチレンテレフタレートとの混合物

(2) シンジオタクティックポリスチレン

(3) 融点が210℃～245℃のポリエチレンテレフタレート共重合体。

【0037】これらの中でも、B層がポリエチレン-2、6-ナフタレートとポリエチレンテレフタレートとの混合物またはシンジオタクティックポリスチレンからなるものが好ましく、特にB層の屈折率を容易に変更できることから、B層が上記混合物からなるものが好ましく、以下に本発明におけるB層を構成するポリマーが、(1) ポリエチレン-2、6-ナフタレートとポリエチレンテレフタレートとの混合物である場合について、詳細に説明する。

【0038】本発明におけるB層を構成するポリマーがポリエチレン-2、6-ナフタレートとポリエチレンテレフタレートとの混合物である場合は、両者の混合の割合は、重量比で5:95～95:5、特に20:80～80:20の範囲であることが好ましい。該混合割合において、ポリエチレンテレフタレートの割合が5重量%未満であるかポリエチレン-2、6-ナフタレートの割合が95重量%を超えるとA層との屈折率の差が不十分となり易く、他方、ポリエチレンテレフタレートの割合が95重量%を超るかポリエチレン-2、6-ナフタレートの割合が5重量%未満だと、A層との熔融粘度の差が過度に大きくなり、多層の積層状態を維持するのが極めて困難になる。

【0039】ところで、B層の屈折率は、ポリエチレンテレフタレートとポリエチレン-2、6-ナフタレートとの混合割合を変更することで調整できるので、反射率の調整のために数々のポリマーを準備する必要はな

い。換言すれば、混合物中の混合割合を調整するだけで容易に種々の反射率の多層積層延伸フィルムとすることができるといふ利点がある。また、B層のポリマーが共重合の場合、低結晶性になるので、熔融状態のポリマーを押し出す際に特別な押し出し機や乾燥機などの設備を必要とする場合がある。しかしながら、本発明では混合物であることから結晶性の低下が小さく、前述のような特別の設備を要しないという利点もある。

【0040】B層を構成する混合物中のポリエチレンテレフタレートとポリエチレン-2、6-ナフタレートについて、更に詳述する。

【0041】混合物中のポリエチレン-2、6-ナフタレートは、ポリエチレン-2、6-ナフタレートホモポリマー、または、全繰り返し単位の少なくとも80モル%、好ましくは90モル%以上がエチレン-2、6-ナフタレートで占められたコポリマーである。これらの上記ホモポリマーが好ましい。上記コポリマーを構成する共重合成分としては、例えば、テレフタル酸、イソフタル酸、2,7-ナフタレンジカルボン酸のような他の芳香族カルボン酸；アジピン酸、アゼライン酸、セバシン酸、デカンジカルボン酸等の如き脂肪族ジカルボン酸；シクロヘキサンジカルボン酸の如き脂環族ジカルボン酸等の酸成分や、ブタンジオール、ヘキサジオール等の如き脂肪族ジオール；シクロヘキサジメタノールの如き脂環族ジオール等のグリコール成分を挙げることができる。

【0042】また、混合物中のポリエチレンテレフタレートは、ポリエチレンテレフタレートホモポリマー、または、全繰り返し単位の少なくとも80モル%、好ましくは90モル%以上がエチレンテレフタレートで占められたコポリマーである。これらの上記ホモポリマーが好ましい。上記コポリマーを構成する共重合成分としては、例えば、イソフタル酸、2,7-ナフタレンジカルボン酸のような他の芳香族カルボン酸；アジピン酸、アゼライン酸、セバシン酸、デカンジカルボン酸等の如き脂肪族ジカルボン酸；シクロヘキサンジカルボン酸の如き脂環族ジオール；シクロヘキサジメタノールの如き脂環族ジオール等のグリコール成分を挙げることができる。これらのコポリマーの中では、イソフタル酸のコポリマーが好ましい。

【0043】ところで、B層を構成する混合物の融点は、元々のポリマーの融点よりは低くなるものの、それぞれのポリマーに由来する2つのピークを形成する。これらB層を構成する混合物の融点ピークの内、高い方のピーク温度は、220℃～265℃、更に240～260℃の範囲にあるものが好ましい。また、A層を構成するポリマーの融点とB層を構成する混合物の高い方の融点ピークとの温度差は、少なくとも10℃更に少なくとも20℃であることが好ましい。この融点差が少なくとも10℃あると、熱処理による配向の差が拡大し易く、



屈折率の差がつけやすい。

【0044】本発明において、延伸されたフィルムは、熱的な安定化のために、熱処理（熱固定処理）をするのが好ましく、B層を構成するポリマーとして、ポリエチレン-2、6-ナフタレートとポリエチレンテレフタレートとの混合物を用いた場合は、A層のポリマーの融点（ $T_m A$ ）を基準としたとき、 $(T_m A - 60)^\circ C \sim (T_m A - 10)^\circ C$ の範囲の温度で熱処理するのが好ましい。

【0045】本発明において、A層またはB層を構成するポリマーの少なくとも一方は、フィルムの巻き取り性を向上させるため、平均粒径が好ましくは $0.01 \sim 2 \mu m$ 、より好ましくは $0.05 \sim 1 \mu m$ 、最も好ましくは $0.1 \sim 0.3 \mu m$ の範囲にある不活性粒子を好ましくは $0.001 \sim 0.5$ 重量%、より好ましくは $0.005 \sim 0.2$ 重量%の割合で含有する。不活性粒子の平均粒径が $0.01 \mu m$ 未満または含有量が $0.001$ 重量%未満ではフィルムの巻き取り性向上が不十分になりやすく、他方、不活性粒子の平均粒径が $2 \mu m$ を超えるまたは含有量が $0.5$ 重量%を超えると粒子による光学特性の悪化が顕著になりやすく、フィルム全体の光線透過率が減少する場合がある。尚、光線透過率は $70\%$ 以上が好ましく、これより低いと光学用途には性能不足となる。

【0046】このような不活性粒子としては例えばシリカ、アルミナ、炭酸カルシウム、磷酸カルシウム、カオリン、タルクのような無機不活性粒子、シリコン、架橋ポリスチレン、スチレン-ジビニルベンゼン共重合体のような有機不活性粒子をあげることができる。

【0047】

【実施例】以下、実施例によって本発明を更に説明する。尚、例中の物性は下記の方法で測定した。

【0048】(1) 各層の厚み（最大厚み、および最小厚み）

サンプルを三角形に切り出し、包埋カプセルに固定後、エポキシ樹脂にて包埋する。そして、包埋されたサンプルをマイクローム（ULTRACUT-S）で縦方向に平行な断面を $50 nm$ 厚みの薄膜切片にしたあと、透過型電子顕微鏡を用いて、加速電子 $100 kV$ にて観察・投影し、写真から各層の厚みを測定し、A層およびB層について、各層の最も厚みの厚い層を最大厚み、最も薄い層の厚みを最小厚みとした。

【0049】(2) 反射率

島津製作所製分光光度計MPC-3100を用い、各波長でのアルミ蒸着したミラーとの相対鏡面反射率を波長 $350 \sim 2100 nm$ の範囲で測定する。その測定された反射率の中で最大のものを、最大反射率とする。

【0050】(3) ピーク反値幅波長

最大反射率と同様の測定を行い、最大反射率の半値幅となる波長の短波長側と長波長側の値をそれぞれ短波長

側、長波長側ピーク半値幅波長とした。

【0051】(4) ヒーターの温度差

図2において、各ヒーター（4a~4d、5a~5d）に対応する上側、下側抑えブロックに熱電対を挿入（図示省略）し、各測定点の温度のうち最大値と最小値の差を温度差とした。

【0052】(5) 屈折率

ナトリウムD線（ $589 nm$ ）を光源とし、マウント液にはヨウ化メチレンを用いて、偏光板を装着したアップ屈折計にて、 $25^\circ C$ 、 $65\% RH$ の条件でサンプルの長手方向の屈折率（ $n_{MD}$ ）と、サンプルの巾方向の屈折率（ $n_{TD}$ ）を測定し、 $n_{MD}$ と $n_{TD}$ の平均値を面内方向屈折率（ $n_{Ave}$ ）とした。ただし、本発明の延伸フィルムでは樹脂Aと樹脂Bに該当する2本の線が見えるので、高屈折率側をA樹脂、低屈折率側をB樹脂の屈折率とした。尚、サンプルの作成は以下のとおりとした。

【0053】（樹脂Aの未延伸フィルムの屈折率）各実施例で用いたA層用押出機とB層用押出機の両方に樹脂A供給して熔融し、熔融した樹脂Aを各実施例で用いた多層フィードブロックに導入し、多層フィードブロック内でポリマーを多層に分岐させた後、多層フィードブロック内の合流部でA層同士を交互に積層させ、ダイへと導き、キャストリングドラム上にキャストしてA層同士が積層された未延伸フィルムを作成した。このシートの面内方向屈折率を測定して樹脂Aの未延伸フィルムの屈折率とした。

【0054】（樹脂Bの未延伸フィルムの屈折率）各実施例で用いたA層用押出機とB層用押出機の両方に樹脂B供給した以外は、上記樹脂Aの屈折率測定と同様にし、樹脂Bの未延伸フィルムの屈折率を測定した。

【0055】（延伸フィルムの屈折率）各実施例で得られた延伸フィルムの面内方向屈折率を測定した。

【0056】【実施例1】まず図1~3に示す装置で、A層の細孔7aとしては、個数が151個、幅が $0.55 mm$ 、深さ $7 mm$ 、B層の細孔7aとしては、個数が150個、幅が $0.55 mm$ 、深さ $7 mm$ 、のSUS630製の多層フィードブロックにマニホールド6、6aの両端に細孔を塞ぐアルミ製のインナーディッケルを挿入し、A層を31層、B層を30層とした。

【0057】また、樹脂Aには固有粘度（オルトクロロフェノール、 $35^\circ C$ ） $0.62 dl/g$ のポリエチレン-2、6-ナフタレート（PEN）、樹脂bには固有粘度（オルトクロロフェノール、 $35^\circ C$ ） $0.63 dl/g$ のポリエチレンテレフタレート（PET）を準備した。そして、PENに真球状シリカ粒子（平均粒径： $0.12 \mu m$ 、長径と短径の比：1.02、粒径の平均偏差：0.1）を0.11wt%添加したものをA層用の樹脂とし、不活性粒子を含まないPENとPETを50:50の重量比で混合したものをB層用の樹脂として調整した。

【0058】A層用の樹脂を160℃で3時間、B層用の混合樹脂を160℃で3時間乾燥後、A層用押出機とB層用押出機に夫々供給して溶融し、溶融した樹脂Aと樹脂Bを多層フィードブロック内に導き、多層フィードブロック内でA層のポリマーを31層、B層のポリマーを30層に分岐させた後、多層フィードブロック内の合流部でA層とB層を交互に積層させ、その積層状態を維持したままダイヘット導き、キャストリングドラム上にキャストして各層の厚みが徐々に変化しながらA層とB層が交互に積層された総数61層の積層未延伸フィルムを作成した。

【0059】このとき、ヒーター4a~4dは片側の4aが285℃、4dが315℃で温度差が30℃になるよう調整し、ヒーター5a~5dもこれらと同様に調整し、またA層とB層の押出し量が1:0.8になるよう調整した。この未延伸積層シートを150℃の温度で縦方向に3.5倍に延伸し、更に155℃の延伸温度で横方向に5.5倍に延伸し、230℃で3秒間の熱固定処理を行った。得られた多層フィルムの物性を表1に示す。尚、別途測定した樹脂Aの屈折率は、未延伸フィルムでは1.647、延伸フィルムでは1.717であり、樹脂B（樹脂H）の屈折率は、未延伸フィルムでは1.612、延伸フィルムでは1.651であった。

【0060】【実施例2~6】ヒーター温度、層数、樹脂の組み合わせを表1に示すとおり変更した以外は実施例と同様に多層フィルムを得た。得られたフィルムの物性測定結果を表1に示す。

【0061】

【表1】

30

	ヒーター温度 ℃	A層				B層				A層B層				反射波長係			
		層数	樹脂	厚み		層数	樹脂	厚み		層数	樹脂	厚み		ピーク半値幅	波長係	最大反射率	%
				最大	最小			最大	最小			最大	最小				
				μm	μm			μm	μm			μm	μm				
実施例1	90	31	PEN	0.14	0.07	2.00	—	—	—	1.89	2.39	410	620	48	48	48	48
実施例2	90	51	PEN	0.20	0.06	3.33	—	—	—	0.16	0.05	3.20	4.00	380	850	38	38
実施例3	45	151	PEN	0.20	0.06	3.33	—	—	—	0.16	0.05	3.20	4.00	370	865	68	68
実施例4	90	31	PEN	0.14	0.07	2.00	—	—	—	0.11	0.06	1.83	2.33	410	620	52	52
実施例5	3	51	PEN	0.14	0.13	1.08	—	—	—	0.11	0.10	1.10	1.40	580	600	57	57
実施例6	2	101	PEN	0.14	0.13	1.05	—	—	—	0.11	0.10	1.10	1.40	575	605	78	78

【0062】尚、表1に示すB層の樹脂は以下の通りである。

樹脂H：不活性粒子を含まないPENとPETを50:50の重量比で混合したもの。

【0063】樹脂I：不活性粒子を含まないイソフタル酸を12mol%共重合したPET共重合体。この樹脂の屈折率は、未延伸フィルムでは1.590、延伸フィルムでは1.630であった。

【0064】

【発明の効果】本発明によれば、多層フィードブロックを温度制御することで、多層積層延伸フィルムの各層の厚みを容易に振ることができ、広い波長に渡って選択的に光を反射する積層フィルムを提供できる。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の一つの実施形態を示す多層フィードブロックの平面図である。

50

15

16

【図2】本発明の一つの実施形態を示す、A層の流路断面を示す断面側面図である。

【図3】本発明の一つの実施形態を示す、B層の流路断面を示す断面側面図である。

【図4】本発明の一つの実施形態において、多層フィードブロック、押出ダイ、冷却ドラム等の配置を示す斜視図である。

【符号の説明】

1、1a：上側、下側抑えブロック  
2、2a：上側、下側分岐ブロック  
3：合流ブロック  
4a～4d：上側ヒーター  
5a～5d：下側ヒーター

\* 6、6a：上側、下側マニホールド

7、7a：上側、下側細孔

8：平行板で仕切られた扁平な流路

9：平行板

10：多層フィードブロックへの溶融樹脂Bの導管

11：多層フィードブロックへの溶融樹脂Aの導管

12：多層フィードブロック

13：押出ダイ

14：ダイより押出されたシート

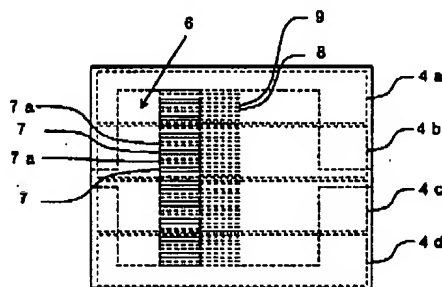
10 15：キャストドラム

16：未延伸フィルム

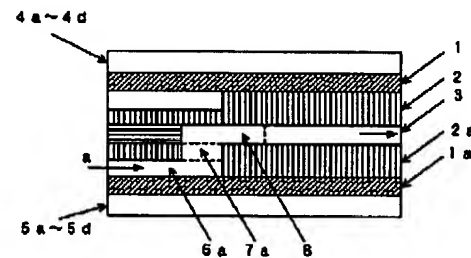
a：A層を構成する溶融樹脂Aの流れ方向

\* b：B層を構成する溶融樹脂Bの流れ方向

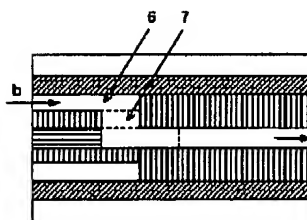
【図1】



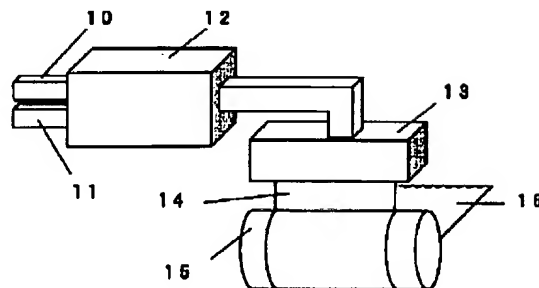
【図2】



【図3】



【図4】



フロントページの続き

(51)Int.Cl.<sup>7</sup>

識別記号

F I

テマコード (参考)

// B 2 9 K 67:00

B 2 9 K 67:00

B 2 9 L 7:00

B 2 9 L 7:00

9:00

9:00

11:00

11:00

F ターム(参考) 4F100 AK41A AK41B AK42B AL05B  
BA02 BA03 BA04 BA05 BA06  
GB90 JA04B JN06 JN08  
JN18  
4F207 AA26 AG01 AG03 AR06 AR12  
KA01 KA17 KB26 KL65 KL84  
KW41  
4J002 CF05X CF08W